

**Mfg. coated solid electrolyte membrane esp. for fuel cell**

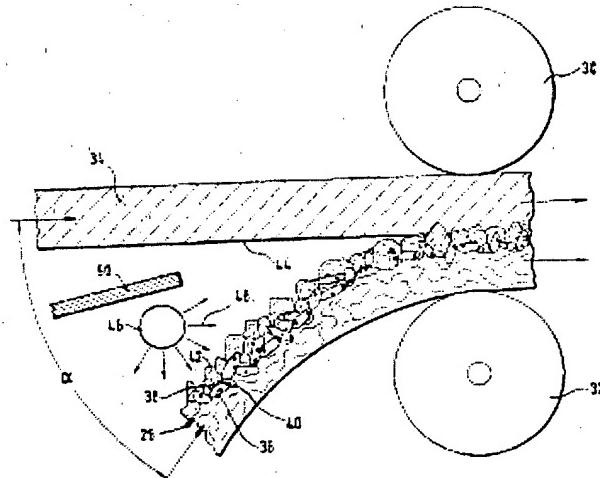
**Patent number:** DE19509749  
**Publication date:** 1996-10-02  
**Inventor:** BEVERS DIRK DIPLOM ING (DE); WAGNER NORBERT DR (DE)  
**Applicant:** DEUTSCHE FÖRSCH LUFT RAUMFAHRT (DE)  
**Classification:**  
- international: H01M4/94; H01M4/04; C25B11/20; C25B11/04  
- european: C25B9/10; H01M8/10B2  
**Application number:** DE19951009749 19950317  
**Priority number(s):** DE19951009749 19950317

**Also published as:**

US5761793 (A1)  
 FR2731844 (A1)

**Abstract of DE19509749**

A method of producing a composite prod., comprising an electrode material, a catalyst-forming material and a solid electrolyte membrane (34) esp. for a fuel cell, involves: (a) preparing a catalytic powder contg. an electrode material, a catalyst-forming material, and a solid electrolyte-forming material; (b) using the powder to form a catalytic layer (18) on a support (16); (c) heating the layer (18), at the side remote from the support (16), to soften the solid electrolyte-forming material; and (d) pressing the layer (18), onto a solid electrolyte membrane (34).



⑯ BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENTAMT

⑯ Offenlegungsschrift  
⑯ DE 195 09 749 A1

⑯ Int. Cl. 6:  
**H 01 M 4/94**  
H 01 M 4/04  
C 25 B 11/20  
C 25 B 11/04

DE 195 09 749 A1  
D

⑯ Aktenzeichen: 195 09 749.1  
⑯ Anmeldetag: 17. 3. 95  
⑯ Offenlegungstag: 2. 10. 96

⑦ Anmelder:  
Deutsche Forschungsanstalt für Luft- und Raumfahrt  
e.V., 53175 Bonn, DE

⑧ Vertreter:  
Grießbach und Kollegen, 70182 Stuttgart

⑨ Erfinder:  
Bevers, Dirk, Dipl.-Ing., 71032 Böblingen, DE;  
Wagner, Norbert, Dr., 71065 Sindelfingen, DE

⑩ Entgegenhaltungen:  
DE 42 41 150 C1  
DE 29 25 349 C2  
DE 44 19 383 A1  
DE 33 32 566 A1  
EP 00 43 632 A1

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑪ Verfahren zur Herstellung eines Verbundes aus Elektrodenmaterial, Katalysatormaterial und einer Festelektrolytmembran

⑫ Um ein Verfahren zur Herstellung eines Verbundes aus Elektrodenmaterial, Katalysatormaterial und einer Festelektrolytmembran für eine elektrochemische Zelle, insbesondere eine Brennstoffzelle, bei welchem Festelektrolytmaterial durch Erweichen desselben in porösen Kontakt mit dem Elektrodenmaterial und dem Katalysatormaterial gebracht wird derart zu verbessern, daß dies möglichst effektiv und kostengünstig durchführbar ist, wird vorgeschlagen, daß ein Elektrodenmaterial, Katalysatormaterial und das Festelektrolytmaterial umfassendes katalytisches Pulver hergestellt wird, daß aus dem katalytischen Pulver eine katalytische Schicht auf einen Träger hergestellt wird, daß die katalytische Schicht auf einer dem Träger abgewandten Seite zum Erweichen des Festelektrolytmaterials aufgeheizt wird und das anschließend die katalytische Schicht bei noch erweichtem Festelektrolytmaterial zur Bildung eines Verbundes unter Druck auf die Festelektrolytmembran aufgebracht wird.

DE 195 09 749 A1

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

BUNDESDRUCKEREI 08. 96 602 040/24

15/27

## Beschreibung

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung eines Verbundes aus Elektrodenmaterial, Katalysatormaterial und einer Festelektrolytmembran für eine elektrochemische Zelle, insbesondere eine Brennstoffzelle, bei welchem Festelektrolytmaterial durch Erweichen desselben in parentiefen Kontakt mit dem Elektrodenmaterial und dem Katalysatormaterial gebracht wird.

Ein derartiges Verfahren ist beispielsweise aus der DE-PS 42 41 150 bekannt. Bei dem in dieser Druckschrift beschriebenen Verfahren wird Festelektrolytmaterial einerseits in Lösungsmittel gelöst aufgetragen und andererseits dann die gesamte Einheit aus Elektrodenmaterial, Katalysatormaterial und Festelektrolytmembran unter Erhitzen derselben heiß verpreßt.

Der Nachteil dieser bekannten Lösung ist darin zu sehen, daß das Heißverpressen der gesamten Einheit aus Elektrodenmaterial, Katalysatormaterial und Festelektrolytmembran eine starke mechanische und thermische Belastung der Materialien zur Folge hat und außerdem Aufheizzeiten erfordert, welche eine kostenintensive Prozeßführung notwendig machen.

Der Erfolg liegt daher die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren der gattungsgemäßen Art derart zu verbessern, daß dies möglichst effektiv und kostengünstig durchführbar ist.

Diese Aufgabe wird bei einem Verfahren der eingangs beschriebenen Art erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß ein Elektrodenmaterial, Katalysatormaterial und Festelektrolytmaterial umfassendes katalytisches Pulver hergestellt wird, daß aus dem katalytischen Pulver eine katalytische Schicht auf einen Träger hergestellt wird, daß die katalytische Schicht auf einer dem Träger abgewandten Seite zum Erweichen des Festelektrolytmaterials aufgeheizt wird und daß anschließend die katalytische Schicht mit dem Träger abgewandten Seite bei noch erweichtem Festelektrolytmaterial zur Bildung eines Verbundes unter Druck auf die Festelektrolytmembran aufgebracht wird.

Der Vorteil der erfindungsgemäßen Lösung ist darin zu sehen, daß einerseits die Herstellung der in der elektrochemischen Zelle als Elektrode dienenden katalytischen Schicht aus katalytischem Pulver sehr einfach erfolgen kann und andererseits diese durch das gezielte Erweichen des in die katalytische Schicht eingelegten Festelektrolytmaterials nur in dem Volumenbereich aufgeheizt wird, in dem die Bildung des Verbundes erwünscht ist, so daß durch das Aufbringen der katalytischen Schicht mit dem noch erweichten Festelektrolytmaterial auf die Festelektrolytmembran unter Druck in einfacher Weise und gezielt an der gewünschten Stelle die Bildung des Verbundes zwischen Elektrodenmaterial, Katalysatormaterial und Festelektrolytmembran unter Heranziehung des Festelektrolytmaterials des katalytischen Pulvers erfolgt. Ferner kann durch die effiziente Aufheizung der katalytischen Schicht lediglich in dem Bereich, in dem die Bildung des Verbundes erwünscht ist, das erfindungsgemäße Verfahren mit geringem Energieaufwand betrieben werden und insbesondere aufgrund der lokal gezielten Einwirkung der Energie diese Energie rasch genug aufgebracht werden, so daß ein schneller und somit effizienter und kostengünstiger Verfahrensablauf möglich ist.

Die Energie könnte rein theoretisch auch durch mechanischen oder thermischen Kontakt, also Wärmeleitung oder Kontakt mit einem heißen Gas in die katalytische Schicht ganz oder teilweise eingebracht werden.

Insbesondere um diese Energie möglichst schnell und zielgerichtet in die katalytische Schicht einzubringen, ist es vorteilhafter, wenn die katalytische Schicht durch elektromagnetische Strahlung aufgeheizt wird.

Diese elektromagnetische Strahlung kann unterschiedlichster Art und Weise sein. Beispielsweise wäre es denkbar, als Strahlungsquelle einen Laser einzusetzen.

Besonders vorteilhaft ist es, wenn die elektromagnetische Strahlung Infrarotstrahlung, insbesondere Wärmestrahlung eines erhitzten Körpers ist.

Rein theoretisch wäre es denkbar, das Festelektrolytmaterial auch in die katalytische Schicht mittels eines Lösungsmittels einzubringen, und beispielsweise dadurch auch die katalytische Schicht zu stabilisieren.

Weit vorteilhafter ist es jedoch, insbesondere um die gesamten Probleme mit abdampfendem Lösungsmittel in einem erfindungsgemäßen Prozeß zu vermeiden, wenn das Festelektrolytmaterial ausschließlich lösungsmittelfrei, nämlich als Pulver, in die katalytische Schicht eingebracht wird.

Insbesondere in diesem Zusammenhang ist es auch vorteilhaft, flüssige Bindemittel zu vermeiden, so daß zweckmäßigerweise ein Verbund in der katalytischen Schicht ausschließlich durch mechanisches Verpressen des katalytischen Pulvers hergestellt wird.

Vorzugsweise dient dabei in dem katalytischen Pulver enthaltenes plastisches Material, beispielsweise PTFE (Polytetrafluorethylen), als Bindemittel wobei gleichzeitig PTFE noch den zusätzlichen Vorteil hat, daß es aufgrund seiner hydrophoben Eigenschaften wasserfreie Bereich in der katalytischen Schicht schafft.

Über den Träger wurden bislang keine näheren Angaben gemacht. Dieser könnte lösbar mit der katalytischen Schicht verbunden sein. Eine vorteilhafte Lösung sieht jedoch vor, daß der Träger und die katalytische Schicht zu einer Einheit verbunden werden, die die Handhabung der katalytischen Schicht bei dem Verfahren erheblich erleichtert.

Besonders vorteilhaft ist es dabei, wenn die katalytische Schicht ausschließlich durch mechanisches Verpressen mit dem Träger verbunden wird.

Vorzugsweise ist dabei ein Trägermaterial so ausgebildet, daß es später eine Diffusionsschicht darstellt, wobei vorzugsweise insbesondere für gasförmige elektrochemische Prozesse, das Trägermaterial so ausgewählt ist, daß gasförmige Reaktionskomponenten durch dieses leicht hindurch diffundieren.

Vorzugsweise ist der Träger aus flexilem Flachmaterial, insbesondere aus Kohlenstoff, ausgebildet und damit auch noch ein guter elektrischer Leiter.

Bei einem besonders vorteilhaften, insbesondere kontinuierlich ablaufenden Verfahren ist vorgesehen, daß der Träger bandförmig ausgebildet ist und insbesondere daß die katalytische Schicht in einem kontinuierlichen Prozeß auf den bandförmigen Träger aufgebracht wird.

Besonders zweckmäßig ist es hierbei, wenn das bandförmige Trägermaterial durch zwei gegeneinander arbeitende Walzen hindurchverläuft und die katalytische Schicht durch Auftragen von katalytischem Pulver auf das Trägermaterial durch die Walzen auf das Trägermaterial aufgewalzt wird.

Hinsichtlich der Behandlung der Festelektrolytmembran vor dem Aufbringen der katalytischen Schicht wurden im Zusammenhang mit den bislang beschriebenen Ausführungsbeispielen keine näheren Angaben gemacht. So wäre es beispielsweise denkbar, die Festelektrolytmembran ebenfalls durch Auftragen von in Lö-

sungsmittel gelöstem Festelektrolytmaterial zusätzlich vorzubehandeln. Besonders vorteilhaft ist es jedoch, wenn die Festelektrolytmembran ebenfalls lösungsmittelfrei behandelt wird, insbesondere, wenn die Festelektrolytmembran keinerlei Lösungsmittel-Vorbehandlung erfährt.

Um einen möglichst innigen Verbund zwischen der Festelektrolytmembran und der katalytischen Schicht zu erreichen ist es gegebenenfalls vorteilhaft, wenn die Festelektrolytmembran auf ihrer der katalytischen Schicht zugewandten Oberseite vor dem Aufbringen der katalytischen Schicht auf eine definierte Temperatur gebracht, beispielsweise aufgeheizt, wird. Ein derartiges gezieltes Temperieren der Festelektrolytmembran kann je nach Temperatur derselben von Vorteil sein, um zu verhindern, daß das Festelektrolytmaterial beim in Kontakt kommen mit dem Festelektrolytmaterial der Festelektrolytmembran aufgrund der niedrigen Temperatur derselben und der dadurch bedingten Abkühlung zu schnell erstarrt, so daß sich kein inniger Verbund zwischen der Festelektrolytmembran und der katalytischen Schicht ergibt.

Das Aufheizen der Festelektrolytmembran vor Aufbringen der katalytischen Schicht kann vorzugsweise so weit gehen, daß die Festelektrolytmembran erweicht, im Extremfall sogar oberflächlich angeschmolzen wird.

Hinsichtlich der Ausbildung der Festelektrolytmembran selbst für eine möglichst effiziente Verfahrensführung wurde im Zusammenhang mit der bisherigen Erläuterung der einzelnen Ausführungsbeispiele keine näheren Angaben gemacht. So wäre bei einem Ausführungsbeispiel denkbar, Membranstücke nacheinander mit der katalytischen Schicht zu versehen, wobei das Versehen mit der katalytischen Schicht und die Herstellung des Verbundes zwischen der Festelektrolytmembran und der katalytischen Schicht bei dem erfindungsgemäßigen Verfahren rasch durchgeführt werden können.

Besonders zweckmäßig läßt sich das erfindungsgemäße Verfahren jedoch dann einsetzen, wenn die Festelektrolytmembran als Band hergestellt wird und wenn auf dieses Band in einem kontinuierlichen Prozeß die katalytische Schicht unter Bildung des Verbundes zwischen der Festelektrolytmembran und der katalytischen Schicht aufgebracht wird.

Besonders zweckmäßig läßt sich ein Verfahren in diesem Fall dann durchführen, wenn die katalytische Schicht ihrerseits bandförmig auf die Festelektrolytmembran aufgebracht wird.

Ein besonders vorteilhaftes Verfahren sieht in diesem Zusammenhang vor, daß die katalytische Schicht auf das als Band ausgebildeten flexiblen Träger zur Bildung eines sogenannten Elektrodenbandes aufgebracht wird und dieses Elektrodenband seinerseits in einem kontinuierlichen Prozeß auf die als Band ausgebildete Festelektrolytmembran unter Bildung des Verbundes zwischen der Festelektrolytmembran und der katalytischen Schicht aufgebracht wird.

Zur Art des Aufbringens der katalytischen Schicht auf die Festelektrolytmembran wurden bislang keine näheren Angaben gemacht. So sieht ein besonders vorteilhaftes Ausführungsbeispiel vor, insbesondere ein Ausführungsbeispiel, bei welchem eine kontinuierliche Verfahrensführung möglich ist, vor, daß die katalytische Schicht auf die Festelektrolytmembran durch Aufwalzen, vorzugsweise durch hindurchführen der katalytischen Schicht und der Festelektrolytmembran durch zwei gegeneinanderwirkende Walzen, aufgebracht wird.

Im Rahmen der bisherigen Beschreibung des erfindungsgemäßen Verfahrens wurden keine näheren Angaben darüber gemacht, wie das Elektrodenmaterial der katalytischen Schicht beschaffen sein soll.

5 Vorzugsweise ist das Elektrodenmaterial der katalytischen Schicht Kohlepulver mit einer Korngröße im Bereich zwischen ungefähr 0,03 und ungefähr 1 µm.

Das pulverförmige Katalysatormaterial ist vorzugsweise Platinpulver mit einer Korngröße zwischen ungefähr 20 und ungefähr 50 Angström.

10 Das verwendete Festelektrolytmaterial in der katalytischen Schicht ist vorzugsweise mit dem Festelektrolytmaterial der Festelektrolytmembran identisch und liegt mit einer Korngröße zwischen ungefähr 0,5 bis ungefähr 2 µm vor. Ein Beispiel eines erfindungsgemäßen Festelektrolytmaterials ist Nafion.

15 Zusätzlich ist vorzugsweise vorgesehen, daß das katalytische Pulver noch ein hydrophobierendes Medium, beispielsweise PTFE, mit einer Korngröße von ungefähr 0,2 bis ungefähr 1 µm aufweist.

20 Ferner ist es noch möglich, zusätzlich noch einen Porenbildner, beispielsweise Zucker, dem katalytischen Pulver zuzugeben.

25 Eine besonders vorteilhafte Zusammensetzung des erfindungsgemäßen katalytischen Pulvers sieht beispielsweise einen Anteil von ungefähr 50% Kohlenstoff, ungefähr 5% Platin, ungefähr 20% PTFE und ungefähr 25% Nafion vor.

30 Ein besonders zweckmäßig einzusetzender Verbund aus Elektrodenmaterial, Katalysatormaterial und Festelektrolytmembran sieht vor, daß die Festelektrolytmembran beiderseits mit einer katalytischen Schicht versehen wird und somit der Verbund als Einheit unmittelbar in einer elektrochemischen Zelle, vorzugsweise einer Brennstoffzelle einsetzbar ist.

35 Der Verbund kann dabei entweder durch gleichzeitiges beiderseitiges Auftragen der katalytischen Schicht hergestellt werden. Noch vorteilhafter ist es jedoch, wenn die katalytische Schicht zuerst auf einer Seite, dann auf der gegenüberliegenden Seite der Festelektrolytmembran aufgebracht wird.

40 Um den erfindungsgemäßen Verbund aus Elektrodenmaterial, Katalysatormaterial und Festelektrolytmembran möglichst ohne umfangreiche Weiterbearbeitung zum Einbau in eine erfindungsgemäße elektrochemische Zelle herzustellen, ist vorzugsweise vorgesehen, daß die katalytische Schicht in Form einzelner, bis zu einem Randbereich der Festelektrolytmembran reichender Schichtbereiche auf die Festelektrolytmembran aufgebracht wird.

45 Besonders zweckmäßig ist es, wenn die Festelektrolytmembran in ihren Randbereichen frei von katalytischem Pulver gehalten wird.

Dies läßt sich beispielsweise bei einer als Band ausgebildeten Festelektrolytmembran dadurch erreichen, daß die katalytische Schicht zwischen seitlichen Randbereichen der Festelektrolytmembran aufgebracht wird.

50 Um ferner zu erreichen, daß die Schichtbereiche allseits von Randbereichen umschlossen werden, ist vorzugsweise vorgesehen, daß zur Bildung von Randbereichen zwischen einzelnen Schichtbereichen die katalytische Schicht abschnittsweise verbundungsfrei auf die Festelektrolytmembran aufgebracht wird. Das heißt, daß die katalytische Schicht zwar durchgehend in Längsrichtung des Bandes auf die Festelektrolytmembran aufgebracht wird, jedoch die Bildung eines Verbundes zwischen der katalytischen Schicht und der Festelektrolytmembran im Bereich der Randbereiche nicht

erfolgt. Dies läßt sich beispielsweise dadurch erreichen, daß abschnittsweise kein Aufheizen der katalytischen Schicht erfolgt, so daß auch das Festelektrolytmaterial in der selben nicht aufschmelzen kann und somit lediglich ein Aufdrücken der katalytischen Schicht auf die Festelektrolytmembran erfolgt, so daß in diesem Bereich die katalytische Schicht leicht ablösbar ist.

Eine weitere, besonders einfach zu gestaltende Vorgehensweise sieht vor, daß zum verbundbildungsfreien Aufbringen der katalytischen Schicht Zwischenstücke zwischen die Festelektrolytmembran und die katalytische Schicht eingelegt werden, so daß selbst bei kontinuierlichem Aufheizen der katalytischen Schicht das erwärmte, insbesondere erschmolzene Festelektrolytmaterial keine Verbindung mit der Festelektrolytmembran eingehen kann, da die Zwischenstücke zwischen beiden liegen und somit beispielsweise eine Verbindung zwischen der katalytischen Schicht und dem Zwischenstück eingegangen wird.

In diesem Fall ist vorteilhafterweise vorgesehen, daß in den verbundbildungsfreien Bereichen die katalytische Schicht entfernt wird. Im einfachsten Fall ist dies dadurch möglich, daß die katalytische Schicht in den verbundbildungsfreien Abschnitten herausgetrennt wird.

Weitere Merkmale und Vorteile der erfundungsgemäßen Lösung sind Gegenstand der nachfolgenden Beschreibung sowie der zeichnerischen Darstellung einzelner Ausführungsbeispiele.

In der Zeichnung zeigen:

Fig. 1 eine schematische Darstellung eines Verfahrens zum Auftragen einer katalytischen Schicht auf einem Träger;

Fig. 2 eine schematische Darstellung des Verfahrens zum Auftragen der katalytischen Schicht auf einer Festelektrolytmembran;

Fig. 3 eine Gesamtdarstellung des Verfahrens zum beiderseitigen Aufbringen einer katalytischen Schicht auf einer Festelektrolytmembran;

Fig. 4 einen Längsschnitt durch eine erfundungsgemäße Festelektrolytmembran;

Fig. 5 einen verbundbildungsfreien Abschnitt durch ein eingelegtes Zwischenstück der Einheit aus katalytischer Schicht und Festelektrolytmembran;

Fig. 6 eine schematische Darstellung des Heraustrennens eines verbundbildungsfreien Abschnitts;

Fig. 7 einen Längsschnitt durch einen erfundungsgemäßen Verbund aus Elektrodenmaterialkatalysatormaterial und Festelektrolytmembran mit Randbereichen zwischen einzelnen Schichtbereichen der katalytischen Schicht;

Fig. 8 eine Draufsicht in Richtung des Pfeils A in Fig. 7; und

Fig. 9 einen schematischen Querschnitt durch eine erfundungsgemäße Brennstoffzelle mit einem erfundungsgemäßen Verbund aus Elektrodenmaterialkatalysatormaterial und Festelektrolytmembran.

Bei einem Ausführungsbeispiel des erfundungsgemäßen Verfahrens wird in einem ersten Schritt, dargestellt in Fig. 1, in einer Messermühle 10 ein katalytisches Pulver 12 aus einer Mischung eines elektrisch leitenden Materials, zum Beispiel Kohlenstoff, eines Katalysatormaterials, zum Beispiel Platin, eines hydrophobierenden Mediums, zum Beispiel PTFE (Polytetrafluorethylen), und eines Festelektrolytmaterials, zum Beispiel Nafion (Nafion ist ein eingetragenes Warenzeichen Du Pont), hergestellt und in der Messermühle 10 miteinander vermischt.

Gegebenenfalls kann noch ein Porenbildner, z. B.

Zucker, hinzugegeben werden.

Das katalytische Pulver setzt sich dabei beispielsweise aus ungefähr 50 Gewichtsprozent Kohlenstoffpartikeln mit einer Korngröße zwischen ungefähr 0,03 und ungefähr 1 µm, vorzugsweise ungefähr 30 nm, ungefähr 5 Gewichtsprozent Platin mit einer Korngröße der Platinpartikel zwischen ungefähr 20 und ungefähr 50 Angström, vorzugsweise ungefähr 30 Angström, ungefähr 20 Gewichtsprozent PTFE-Pulver mit einer Korngröße zwischen ungefähr 0,2 und ungefähr 1 µm, vorzugsweise ungefähr 0,5 µm und ungefähr 25 Gewichtsprozent Nafionpulver mit einer Korngröße zwischen ungefähr 0,5 und ungefähr 2 µm, vorzugsweise ungefähr 1 µm, zusammen.

Vorzugsweise sind die Kohlenstoffpartikel bereits platiniert, d. h. mit Platinpartikeln der oben angegebenen Größe versehen, wobei das Auftragen der Platinpartikel auf die Kohlenstoffpartikel in einem naßchemischen Verfahren erfolgt.

Diese Bestandteile des katalytischen Pulvers werden in der schnellaufenden Messermühle 10 zu einer homogenen Mischung miteinander vermischt und einem Verteiler 13 einer Auftrageeinrichtung 14 zugeführt, mit welcher auf einen in der Brennstoffzelle als eine Gasdiffusion zulassenden Träger 16, beispielsweise aus hydrophobiertem Kohlenstoffpapier oder Kohlenstofffaser, eine katalytische Schicht 18 mit einer Dicke zwischen ungefähr 50 und ungefähr 200 µm mittels zweier achspiegelnd angeordneter und in geringem Abstand voneinander angeordneter Walzen 20 und 22 aufgewalzt wird.

Dabei verläuft der Träger 16 auf der Walze 20 anliegend zwischen den beiden Walzen 20 und 22 hindurch, wobei sich zwischen dem Träger 16 und der Walze 22 ein Spalt 24 bildet, in welchen mit dem Verteiler 13 soviel katalytisches Pulver 12 eingebracht wird, daß die nach durch Durchlaufen der beiden Walzen 20 und 22 auf dem Träger 16 aufgewalzte katalytische Schicht 18 die angegebene Dicke aufweist.

Der Träger 16 mit der später als Elektrode dienenden katalytischen Schicht 18 wird vorzugsweise als kontinuierliches Band hergestellt und bildet ein sogenanntes Elektrodenband 26 für eine erfundungsgemäße Brennstoffzelle mit einem Festelektrolyten.

In diesem Elektrodenband 26 wird dabei die Verbindung zwischen den Partikeln der katalytischen Schicht 18 innerhalb derselben und zwischen der katalytischen Schicht 18 und dem Träger 16 rein durch mechanischen, von den beiden Walzen 20 und 22 ausgeübten mechanischen Druck auf das in den Spalt 24 eingebrachte katalytische Pulver 12 und den Träger 16 hergestellt.

Zum Herstellen einer Verbundeinheit aus Elektrode und Festelektrolyt für eine Brennstoffzelle wird einem zweiten Walzenpaar 30 und 32 mit parallel zueinander verlaufenden Achsen einerseits eine Membran 34 aus Festelektrolytmaterial auf der Walze 30 aufliegend zugeführt und andererseits das Elektrodenband, wobei die katalytische Schicht der Membran 34 zugewandt angeordnet ist.

Die katalytische Schicht 18 enthält, wie in Fig. 2 vergrößert dargestellt, neben Kohlenstoffpartikeln 36, die als elektrische Leiter dienen, an diesen gehaltene Platinpartikel 38, die als Katalysator dienen, und dem mit dem Kohlenstoff verbundenen PTFE 40, als hydrophobierendem Medium, noch zusätzlich Partikel 42 aus dem Festelektrolytmaterial, beispielsweise Nafion, aus welchem auch die Membran 34 hergestellt ist.

Unmittelbar bevor durch das Walzenpaar 30 und 32 ein Verpressen des Elektrodenbandes 26 mit der Mem-

bran 34 erfolgt, werden die Membran 34 und das Elektrodenband 26 in einem Winkel  $\alpha$  zueinander geführt, wobei vor einem Auflegen der katalytischen Schicht 18 auf einer dieser zugewandten Oberfläche 44 der Membran 34 mittels einer Wärmequelle 46, beispielsweise gebildet durch einen Heizdraht oder einen anders gearbeiteten Infrarotstrahler die Partikel 42 des Festelektrolytmaterials aufgrund der von der Wärmequelle abgegebenen thermischen Strahlung 48 auf die Glaspunkttemperatur erhitzt, vorzugsweise geschmolzen oder angeschmolzen und in diesem Zustand danach durch das Walzenpaar 30 und 32 auf die Oberfläche 44 der Membran 34 aufgepreßt, wodurch die aufgeschmolzenen oder angeschmolzenen Partikel 42 des Festelektrolytmaterials durch das Verpressen des Elektrodenbandes 26 mit der Membran 34 zwischen den Walzen 30 und 32 zusammen mit den übrigen Partikeln der katalytischen Schicht 18 auf die Oberfläche 44 auf oder in die Oberfläche 44 der Membran 34 eingepreßt werden. Insbesondere tritt der durch Aufschmelzen oder Anschmelzen der Partikel 42 erzeugte flüssige Festelektrolyt in die Zwischenräume zwischen den Partikeln der katalytischen Schicht ein und läßt somit eine dreidimensionale Dreiphasengrenze zwischen dem ionenleitenden Festelektrolytmaterial, dem Katalysator und dem elektrisch leitenden Material entstehen.

Ferner erfolgt gleichzeitig ein Verkleben zwischen den Partikeln 42 der katalytischen Schicht 18 untereinander und der Membran 34, wodurch insgesamt die katalytische Schicht 18 und mit dieser dann auch der Träger 16 auf der Membran 34 haften.

Im Falle der Verwendung von Nafion 117 als Festelektrolytmaterial erfolgt ein Aufheizen der Festelektrolytpartikel 42 auf ungefähr 135°C.

Je nach dem, ob die Membran 34 im Bereich ihrer Oberfläche 44 ebenfalls aufgeschmolzen werden soll oder nicht, ist zwischen der Wärmequelle 46 und der Oberfläche 44 der Membran 34 noch ein Wärmeschutzschild 50 vorgesehen, wobei durch das Wärmeschutzschild 50 der Grad der Aufheizung der Membran 34 im Bereich ihrer Oberfläche 44 festlegbar ist.

Ferner ist durch die Rotationsgeschwindigkeit der Walzen 30 und 32 und die Strahlungstemperatur der Wärmequelle 46 auch die Aufschmelztiefe in der katalytischen Schicht 18, das heißt also die Tiefe, in welcher die Partikel 42 des Festelektrolytmaterials in der katalytischen Schicht 18 noch aufgeschmolzen werden, einstellbar.

Um ferner die Verbindung zwischen dem Elektrodenband 26 und der Membran 34 definiert zu steuern ist vorgesehen, daß die Walzen 30 und 32 temperierbar sind, so daß über die Walzen 30 und 32 auch die Erstarung des aufgeschmolzenen Festelektrolytmaterials beim und nach dem Verpressen durch Wärmezufuhr oder Abfuhr über die Walzen 30 und 32 einstellbar ist.

Um die Membran 34 beidseitig mit einem Elektrodenband 26 zu beschichten ist zusätzlich, wie in Fig. 3 dargestellt, ein weiteres Walzenpaar 30', 32' vorgesehen, welches nach dem Walzenpaar 30, 32 die bereits einerseits mit dem Elektrodenband 26 versehene Membran 34 auf der gegenüberliegenden Seite mit einem Elektrodenband 26' versieht, welches mit einer Auftrageinrichtung 14 in gleicher Weise hergestellt ist wie das Elektrodenband 26, so daß diesbezüglich auf die vorstehenden Ausführungen vollinhaltlich Bezug genommen wird.

Alternativ dazu ist es möglich, die Membran 34 gleichzeitig beidseitig mit dem Elektrodenband 26 zu beschichten.

Das Ergebnis des erfindungsgemäßen Verfahrens ist ein Verbund aus der aus Festelektrolytmaterial bestehenden Membran 34 mit beiderseits innig mit dieser verbundenen katalytischen Schichten 18 und 18' und dem jeweiligen auf der katalytischen Schicht 18 bzw. 18' aufliegenden Träger 16 bzw. 16', welcher die spätere Gasdiffusionsschicht bildet.

Das erfundungsgemäße Verfahren erlaubt somit einen Verbund aus Membran und Elektrode in Form eines kontinuierlichen Materialstreifens herzustellen.

Da es bei Festelektrolyt-Brennstoffzellen erforderlich ist, im Bereich der Membran 34 abzudichten und somit die im Verbund auf die Membran 34 aufgebrachte Elektrode 16 mit Unterbrechung herzustellen, ist beispielsweise vorgesehen, daß beim Herstellen des Verbundes aus Membran 34 und dem Elektrodenband 26 auf die Oberfläche 44 der Membran 34 Zwischenstücke 52 aufgelegt werden, welche verhindern, daß das Elektrodenband 26 mit den an- oder aufgeschmolzenen Partikeln 42 des Festelektrolytmaterials sich innig mit der Oberfläche 44 der Membran 34 verbündet, sondern dazu führen, daß sich die Partikel 42 mit den Zwischenstücken 52 verbinden, die lose auf der Oberfläche 44 der Membran 34 aufgelegt sind. Damit ist es möglich, wie in Fig. 5 und 6 dargestellt, durch ein einfaches Schneidverfahren mit einem Messer 54 die die Zwischenstücke 52 überdeckenden Bereiche des Elektrodenbandes 26 nach dem Aufwalzen des Elektrodenbandes 26 auf die Membran 34 mittels der Walzen 30 und 32 herauszutrennen und damit Randbereiche 58 zwischen zwei aufeinanderfolgenden Elektrodenbereichen 60 zu schaffen, in denen eine direkte Abdichtung auf der Oberfläche 44 der Membran 34 möglich ist.

Ferner wird vorteilhafterweise, wie in Fig. 7 und 8 dargestellt, das Elektrodenband 26 mit einer Breite BE hergestellt, welche kleiner ist als die Breite BM der Membran 34, so daß bei mittig auf die Membran aufgetragenem Elektrodenband 26 beiderseits desselben seitliche Randbereiche 58 verbleiben, in welchen ebenfalls eine direkte Abdichtung mit der Oberfläche 44 der Membran 34 rund um einen der Elektrodenbereiche 60 möglich ist.

Mit derartigen auf die Membran 34 aufgetragenen Elektrodenbereichen 60 lassen sich schematisch in Fig. 9 dargestellte Brennstoffzellen 70 herstellen, bei welchen die Membran 34 mit den Randbereichen 58 in einem Gehäuse 72 dichtend gehalten ist und die beiderseits auf der Membran 34 sitzenden Elektrodenbereiche 60 auf ihren der Membran 34 abgewandten Seiten 74 durch Stromkollektoren 76, 78 kontaktiert sind, die jeweils auf den Trägern 16 aufliegen, welche dem Anpreßdruck der Stromkollektoren auf die als Elektrode dienende katalytische Schicht 18 gleichmäßig verteilen. Ferner lassen die Träger 16 gleichzeitig die Diffusion von H<sub>2</sub> und O<sub>2</sub> zu den Elektroden 18 und zur Membran 34 zu.

## **Patentansprüche**

1. Verfahren zur Herstellung eines Verbundes aus Elektrodenmaterial, Katalysatormaterial und einer Festelektrolytmembran für eine elektrochemische Zelle, insbesondere eine Brennstoffzelle, bei welchem Festelektrolytmaterial durch Erweichen desselben in parentiefen Kontakt mit dem Elektrodenmaterial und dem Katalysatormaterial gebracht wird, dadurch gekennzeichnet, daß ein Elektrodenmaterial, Katalysatormaterial und das Festelek-

- trolytmaterial umfassendes katalytisches Pulver hergestellt wird, daß aus dem katalytischen Pulver eine katalytische Schicht auf einen Träger hergestellt wird, daß die katalytische Schicht auf einer dem Träger abgewandten Seite zum Erweichen des Festelektrolytmaterials aufgeheizt wird und das anschließend die katalytische Schicht bei noch erweichtem Festelektrolytmaterial zur Bildung eines Verbundes unter Druck auf die Festelektrolytmembran aufgebracht wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die katalytische Schicht durch elektromagnetische Strahlung aufgeheizt wird.
3. Verfahren nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß die als elektromagnetische Strahlung Wärmestrahlung eines erhitzten Körpers eingesetzt wird.
4. Verfahren nach einem der voranstehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß das Festelektrolytmaterial ausschließlich lösungsmittelfrei in die katalytische Schicht eingebracht wird.
5. Verfahren nach einem der voranstehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß ein Verbund in der katalytischen Schicht ausschließlich durch mechanisches Verpressen des katalytischen Pulvers hergestellt wird.
6. Verfahren nach einem der voranstehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß der Träger und die katalytische Schicht zu einer Einheit verbunden werden.
7. Verfahren nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß die katalytische Schicht ausschließlich durch mechanisches Verpressen mit dem Träger verbunden wird.
8. Verfahren nach Anspruch 6 oder 7, dadurch gekennzeichnet, daß ein Trägermaterial so ausgewählt ist, daß es eine Diffusionsschicht für Reaktionskomponenten der elektrochemischen Zelle bildet.
9. Verfahren nach einem der voranstehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß das Trägermaterial so ausgewählt ist, daß es einem elektrischen Leiter zur Kontaktierung der als Elektrode dienenden katalytischen Schicht bildet.
10. Verfahren nach einem der Ansprüche 6 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß der Träger aus flexiblem Flachmaterial gebildet ist.
11. Verfahren nach Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, daß der Träger bandförmig ausgebildet ist.
12. Verfahren nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, daß die katalytische Schicht in einem kontinuierlichen Prozeß auf den bandförmigen Träger aufgebracht wird.
13. Verfahren nach einem der voranstehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Festelektrolytmembran auf ihrer der katalytischen Schicht zugewandten Oberseite vor dem Aufbringen der katalytischen Schicht auf eine definierte Temperatur gebracht wird.
14. Verfahren nach einem der voranstehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Festelektrolytmembran als Band verwendet wird und auf diese in einem kontinuierlichen Prozeß die katalytische Schicht unter Bildung des Verbundes zwischen der Festelektrolytmembran und der katalytischen Schicht aufgebracht wird.
15. Verfahren nach Anspruch 14, dadurch gekenn-

zeichnet, daß die katalytische Schicht ihrerseits bandförmig auf die Festelektrolytmembran aufgebracht wird.

16. Verfahren nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, daß die katalytische Schicht auf den als Band ausgebildeten flexiblen Träger zur Bildung eines sogenannten Elektrodenbandes aufgebracht und dieses seinerseits in einem kontinuierlichen Prozeß auf die als Band ausgebildete Festelektrolytmembran unter Bildung des Verbundes zwischen der Festelektrolytmembran und der katalytischen Schicht aufgebracht wird.

17. Verfahren nach einem der voranstehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Festelektrolytmembran beiderseits mit einer katalytischen Schicht versehen wird.

18. Verfahren nach einem der voranstehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die katalytische Schicht in Form einzelner, bis zu einem Randbereich der Festelektrolytmembran reichender Schichtbereiche auf die Festelektrolytmembran aufgebracht wird.

Hierzu 5 Seite(n) Zeichnungen

**- Leerseite -**

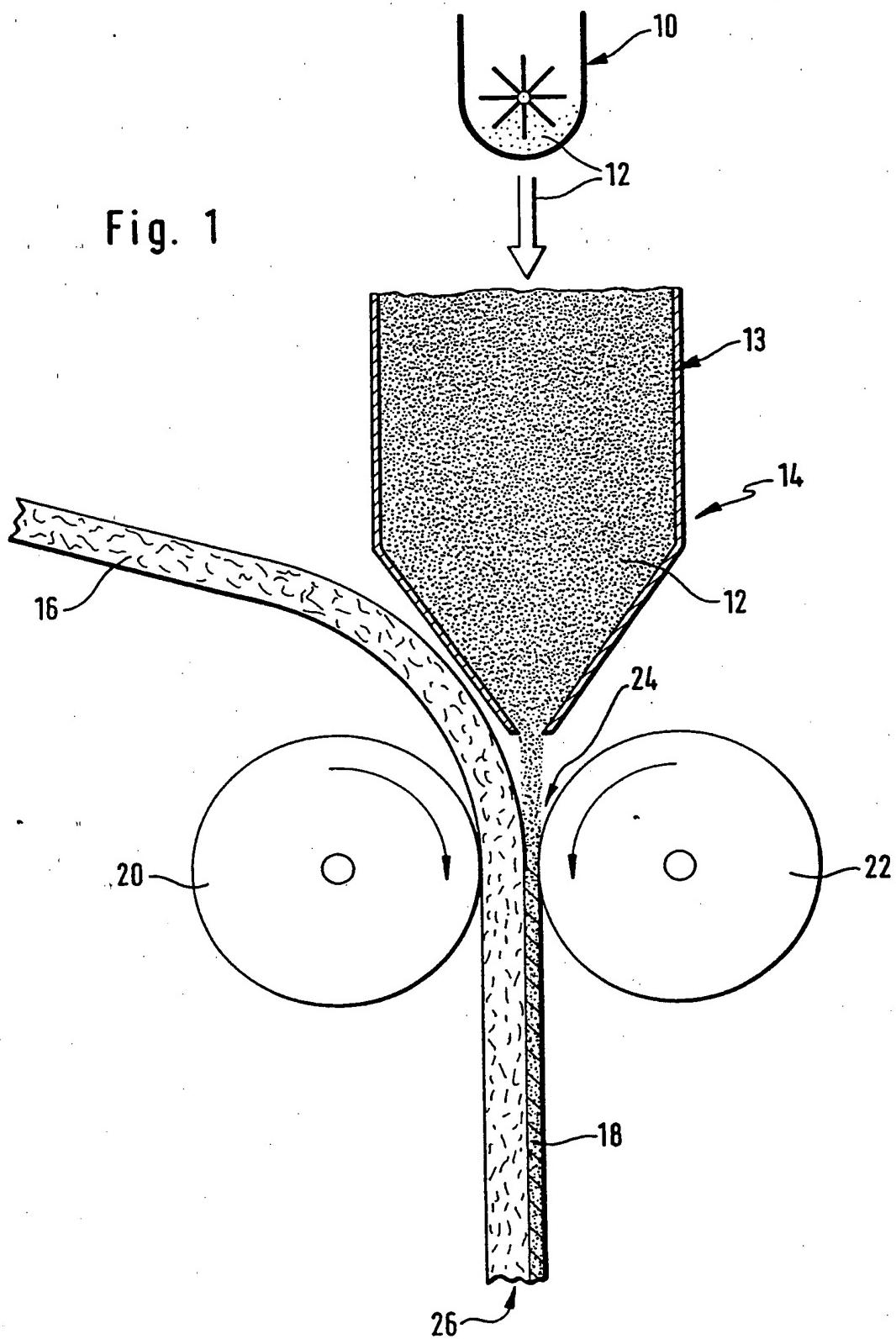
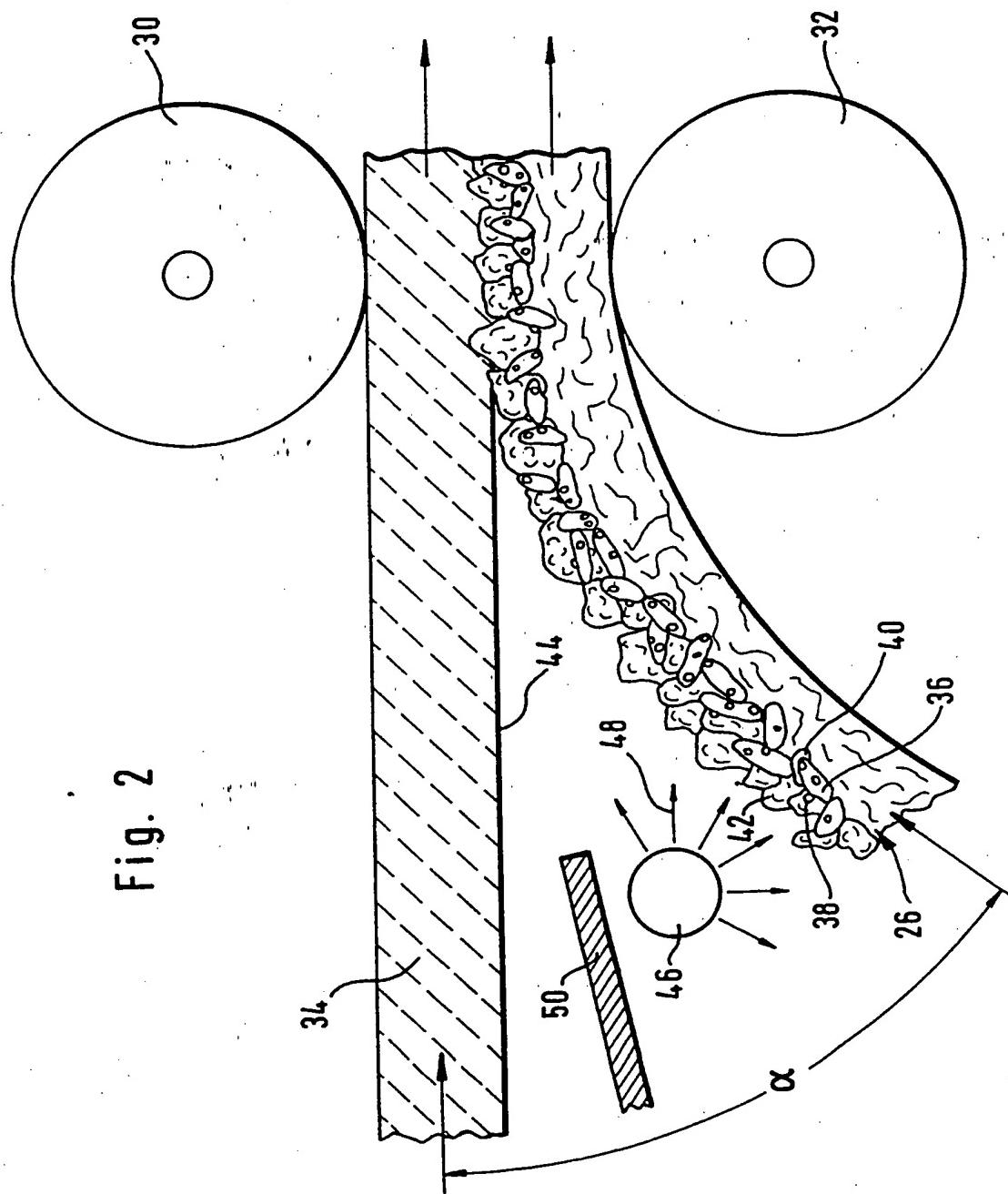


Fig. 2



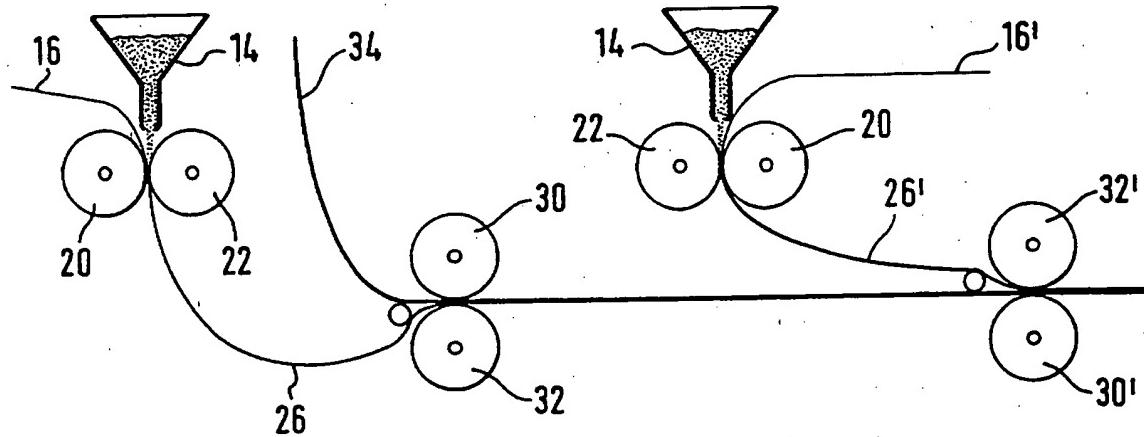
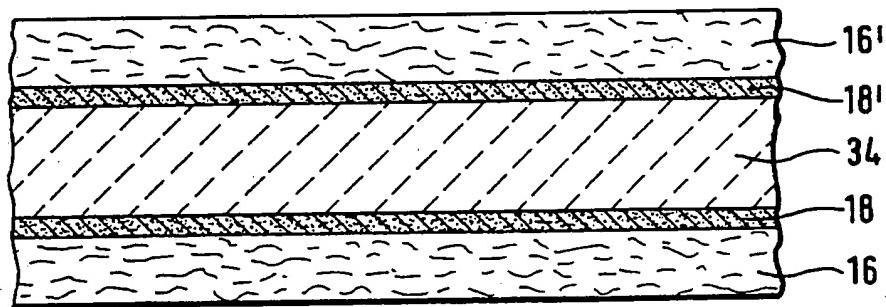
**Fig. 3****Fig. 4**

Fig. 5

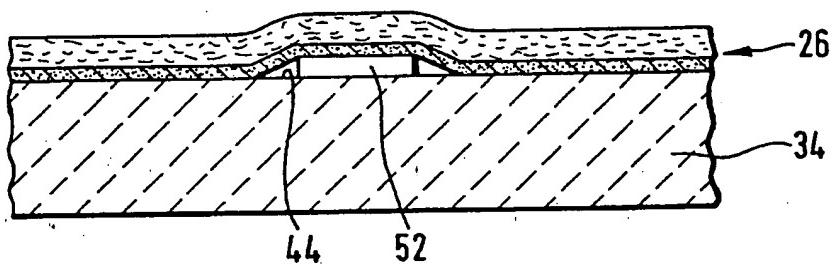


Fig. 6

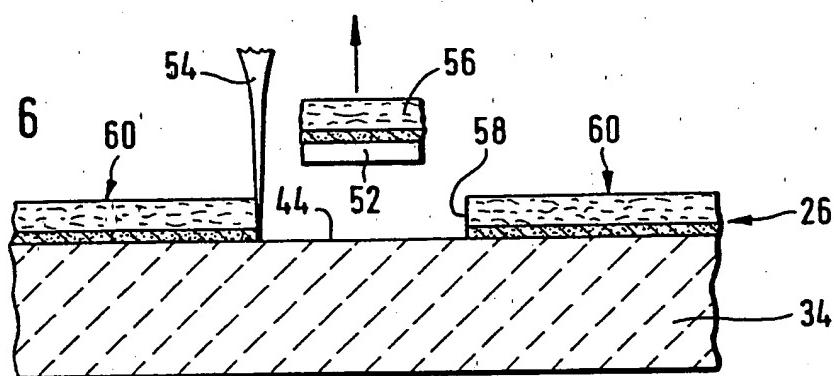


Fig. 7

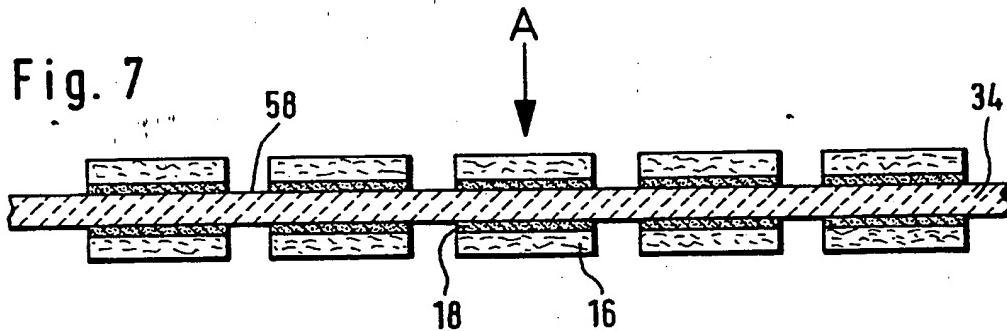
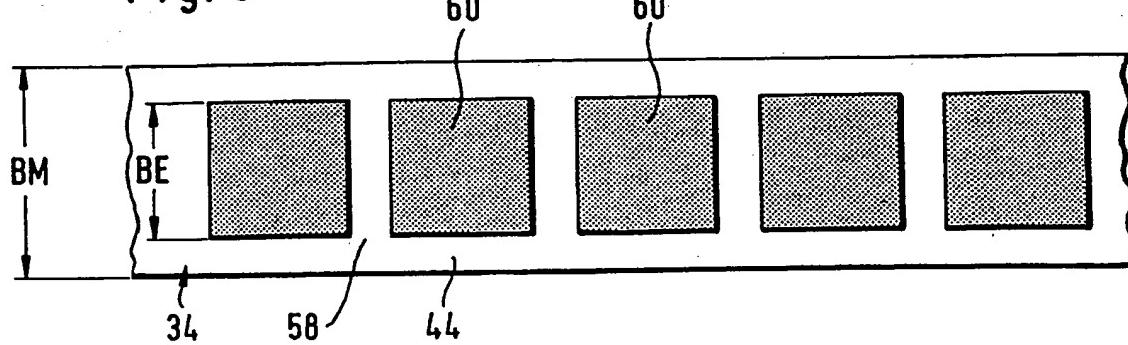


Fig. 8



**Fig. 9**